

日 本 国 特 許 庁 03.12.2004  
JAPAN PATENT OFFICE

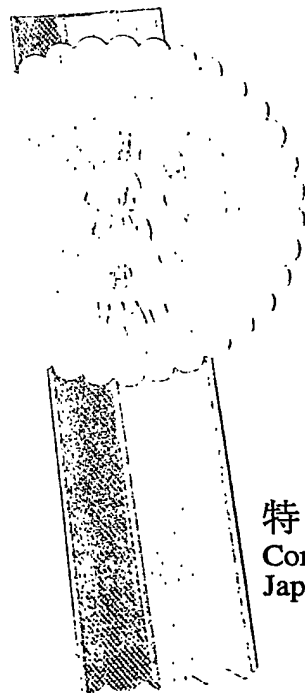
別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 2 0 0 4 年 2 月 2 6 日  
Date of Application:

出 願 番 号 特 願 2 0 0 4 - 0 5 0 7 1 9  
Application Number:  
[ST. 10/C]: [ J P 2 0 0 4 - 0 5 0 7 1 9 ]

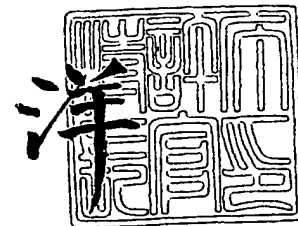
出 願 人 花 王 株 式 有 限 公 司  
Applicant(s):



2 0 0 5 年 1 月 2 1 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小 川



BEST AVAILABLE COPY

出証番号 出証特 2 0 0 4 - 3 1 2 3 2 7 1

【書類名】 特許願  
【整理番号】 P00771602  
【あて先】 特許庁長官 殿  
【国際特許分類】 A23F 3/14  
A23L 1/30  
A23L 2/52

【発明者】  
【住所又は居所】 茨城県鹿島郡神栖町東深芝 20 花王株式会社研究所内  
【氏名】 斉藤 淳

【発明者】  
【住所又は居所】 茨城県鹿島郡神栖町東深芝 20 花王株式会社研究所内  
【氏名】 高谷 仁

【発明者】  
【住所又は居所】 茨城県鹿島郡神栖町東深芝 20 花王株式会社研究所内  
【氏名】 清水 雅美

【発明者】  
【住所又は居所】 東京都墨田区文花 2-1-3 花王株式会社研究所内  
【氏名】 小倉 義和

【特許出願人】  
【識別番号】 000000918  
【氏名又は名称】 花王株式会社

【代理人】  
【識別番号】 110000084  
【氏名又は名称】 特許業務法人アルガ特許事務所  
【代表者】 中嶋 俊夫

【選任した代理人】  
【識別番号】 100068700  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 有賀 三幸

【選任した代理人】  
【識別番号】 100077562  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 高野 登志雄

【選任した代理人】  
【識別番号】 100096736  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 中嶋 俊夫

【選任した代理人】  
【識別番号】 100101317  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 的場 ひろみ

【選任した代理人】  
【識別番号】 100117156  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 村田 正樹

【選任した代理人】  
【識別番号】 100111028  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 山本 博人

【手数料の表示】

【予納台帳番号】

164232

【納付金額】

21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】

特許請求の範囲 1

【物件名】

明細書 1

【物件名】

要約書 1

## 【書類名】特許請求の範囲

## 【請求項 1】

緑茶抽出物を有機溶媒と水の重量比が  $91/9 \sim 97/3$  の混合溶液に分散させ、活性炭及び酸性白土又は活性白土と接触させて、抽出物の乾燥重量で非重合体カテキン類を 25～90 重量%含有する精製緑茶抽出物の製造方法。

## 【請求項 2】

有機溶媒が、エタノールである請求項 1 記載の製造方法。

## 【請求項 3】

精製緑茶抽出物の非重合体カテキン類／カフェイン重量比が 25～200 である請求項 1 又は 2 記載の製造方法。

## 【請求項 4】

精製緑茶抽出物の固形分中で、非重合体カテキン類を 40～90 重量%含有し、非重合体カテキン類／カフェイン重量比が 25～200 である精製緑茶抽出物。

【書類名】明細書

【発明の名称】精製緑茶抽出物の製造方法

【技術分野】

【0001】

本発明は緑茶抽出物から、非重合体カテキン類を高濃度含有する精製緑茶抽出物を製造する方法に関する。

【背景技術】

【0002】

カテキン類はコレステロール上昇抑制作用や $\alpha$ -アミラーゼ活性阻害作用などを有することが知られている（例えば、特許文献1、特許文献2参照）。カテキン類のこのような生理効果を発現させるには、成人一日あたり4～5杯のお茶を飲むことが必要である。このため、より簡便に大量のカテキン類を摂取できるよう、飲料にカテキン類を高濃度に配合する技術が望まれている。

【0003】

しかし、茶葉中にはカテキン類が約15%含まれているものの、カフェイン成分も通常2～4%含まれている。カフェインは中枢神経興奮作用を示すことから、眠気抑制に使用されている反面、過剰摂取による神経過敏、吐き気、不眠などの有害作用を引き起こす原因にもなるといわれている。このため、カフェイン含有組成物から、カフェインのみを選択的に除去する方法が検討されてきた。

【0004】

例えば、コーヒーの脱カフェイン方法として、120～250気圧下において、コーヒーを活性炭等のカフェイン吸着剤と接触させる方法（特許文献3）や、カフェインを含有する水溶液を活性白土または酸性白土と接触させることにより選択的にカフェインを除去する方法（特許文献4）が提案されている。

【0005】

しかしながら、前者は超臨界抽出技術に関するものであり、プロセス上の設備負荷が過大であり、工業レベルでの実施において簡易性に欠ける。また、この方法はカフェインのみを選択的に除去するのではなく、有効成分であるカテキン類組成も変化してしまうという問題がある。一方、後者の方法は、活性白土または酸性白土を使用するだけで選択的にカフェインを除去できるが、色相が悪化する場合があるなどの問題もあった。

【0006】

【特許文献1】特開昭60-156614号公報

【特許文献2】特開平3-133928号公報

【特許文献3】特開昭53-18772号公報

【特許文献4】特開平6-142405号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

本発明の目的は、緑茶抽出物中のカフェインを、カテキン類組成を著しく変化させることなく、しかも色相を悪化させずに、選択的に除去する方法を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0008】

本発明者は、緑茶抽出物に含まれるカフェインを、特定の割合の水と有機溶媒の混合溶液中に分散させた状態で、活性炭と酸性白土又は活性白土とに接触させることにより、カテキン類組成を著しく変化させることなく、しかも色相を悪化させずに、選択的にカフェインを除去できることを見出した。

【0009】

本発明は、緑茶抽出物を有機溶媒と水の重量比が91/9～97/3の混合溶液に分散させ、活性炭及び酸性白土又は活性白土と接触させることを特徴とする、抽出物の乾燥重量で非重合体カテキン類を25～90重量%含有する精製緑茶抽出物の製造方法を提供す

るものである。

また本発明は、緑茶抽出物を、エタノールと水の重量比が91/9～97/3の混合溶液に分散させ、活性炭及び酸性白土又は活性白土と接触させて、カフェイン含有カテキン類組成物から選択的にカフェインを除去する方法を提供するものである。

#### 【発明の効果】

##### 【0010】

本発明によれば、緑茶抽出物中のカフェインを、カテキン類組成を変化させることなく、しかも色相を悪化させずに、選択的に除去することができる。この方法は、カテキン濃度が高く、カフェイン濃度の低い緑茶抽出物の製造法に特に有用である。

#### 【発明を実施するための最良の形態】

##### 【0011】

本発明で用いる緑茶抽出物は、非重合体カテキン類を1種以上含有するものである。非重合体カテキン類とは、カテキン、ガロカテキン、カテキンガレート、ガロカテキンガレート等の非エピ体カテキン類及びエピカテキン、エピガロカテキン、エピカテキンガレート、エピガロカテキンガレート等のエピ体カテキン類をあわせての総称である。

##### 【0012】

このような非重合体カテキン類を含有する緑茶抽出物としては、緑茶の茶葉から得られた抽出液を乾燥または濃縮したものなどが挙げられる。

##### 【0013】

ここで使用する茶葉は、より具体的には、Camellia属、例えばC. sinensis、C. assamica、及びやぶきた種、又はそれらの雑種等から得られる茶葉から製茶された茶葉が挙げられる。製茶された茶葉には、煎茶、番茶、玉露、てん茶、釜炒り茶等の緑茶類がある。

茶葉から緑茶抽出物を得る為の抽出方法は、攪拌抽出等の方法により行うことができる。抽出の際、水にあらかじめアスコルビン酸ナトリウム等の有機酸又は有機酸塩類を添加しても良い。また、煮沸脱気や窒素ガス等の不活性ガスを通気して溶存酸素を除去しつつ、いわゆる非酸化的雰囲気下で抽出する方法を併用してもよい。このようにして得られた抽出液を乾燥し、本発明に使用する緑茶抽出物を得る。緑茶抽出物の形態としては、液体、スラリー、半固体、固体の状態が挙げられる。エタノール中での分散性の観点から、スラリー、半固体、固体の状態が好ましい。

##### 【0014】

本発明に使用する緑茶抽出物には茶葉から抽出した抽出液を乾燥して使用するかわりに、茶抽出物の濃縮物を用いても、茶葉からの抽出液の乾燥物と茶抽出物の濃縮物とを併用しても良い。

ここで、茶抽出物の濃縮物とは、茶葉から熱水又は水溶性有機溶媒により抽出された抽出物を濃縮したものであり、例えば、特開昭59-219384号公報、特開平4-20589号公報、特開平5-260907号公報、特開平5-306279号公報等に記載されている方法により調製したものをいう。

具体的には、緑茶抽出物として、市販の東京フードテクノ社製「ポリフェノン」、伊藤園社製「テアフラン」、太陽化学社製「サンフェノン」などの粗カテキン製剤を用いることもできる。

##### 【0015】

本発明で使用する緑茶抽出物としては、乾燥重量で、非重合体カテキン類を25～90重量%、更に25～70重量%、更にまた25～40重量%含有する茶抽出物の濃縮物を用いるのが、非重合体カテキン類以外の呈味成分が残っているために好ましい。

##### 【0016】

本発明で用いる有機溶媒としては、エタノール、メタノール、アセトン、酢酸エチル等が挙げられる。これらのうち、エタノール、メタノール、アセトンの親水性有機溶媒が好ましく、特に食品への使用を考慮すると、エタノールが好ましい。

##### 【0017】

本発明においては、有機溶媒と水の重量比を91/9～97/3、好ましくは91/9

～95/5、より好ましくは92/8～95/5の範囲に調整する。有機溶媒の割合が97/3を超えるとカテキン類の抽出効率が落ちてしまい、また91/9未満では、緑茶抽出物の精製度合いが落ちることとなる。

#### 【0018】

緑茶抽出物を有機溶媒と水の混合溶液に分散する方法は特に制限されず、カフェイン含有カテキン類組成物を最終的に処理する際の有機溶媒と水の重量比が91/9～97/3の範囲になっていれば良い。

#### 【0019】

本発明においては、有機溶媒と水の混合溶液100重量部に対して、緑茶抽出物10～40重量部、特に10～30重量部添加して処理するのが、緑茶抽出物を効率良く処理できるので好ましい。

#### 【0020】

水または有機溶媒の必要量の添加時間は10～30分程度の時間でゆっくり滴下するのが好ましい。また、カテキン類の抽出効率を上げるために攪拌状態で滴下するのが好ましい。水の滴下終了後は10～120分程度の熟成時間を設けると更に好ましい。

これらの処理は、10～60℃で行うことができ、特に10～50℃、更に10～40℃で行うのが好ましい。

#### 【0021】

本発明で用いる活性炭としては、一般に工業レベルで使用されているものであれば特に制限されず、例えば、ZN-50（北越炭素社製）、クラレコールGLC、クラレコールPK-D、クラレコールPW-D（クラレケミカル社製）、白鷺AW50、白鷺A、白鷺M、白鷺C（武田薬品工業社製）などの市販品を用いることができる。

活性炭の細孔容積は0.01～0.8mL/gが好ましく、特に0.1～0.7mL/gが好ましい。また、比表面積は800～1300m<sup>2</sup>/g、特に900～1200m<sup>2</sup>/gの範囲のものが好ましい。なお、これらの物性値は窒素吸着法に基づく値である。

#### 【0022】

活性炭は、有機溶媒と水の混合溶液100重量部に対して0.5～5重量部、特に0.5～3重量部添加するのが好ましい。活性炭の添加量が少なすぎると、カフェイン除去効率が悪くなり、また多すぎるとろ過工程におけるケーキ抵抗が大きくなり好ましくない。

#### 【0023】

本発明で用いる酸性白土又は活性白土は、ともに一般的な化学成分として、SiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、CaO、MgO等を含有するものであるが、SiO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>比が3～12、特に4～9であるのが好ましい。またFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を2～5重量%、CaOを0～1.5重量%、MgOを1～7重量%含有する組成のものが好ましい。

活性白土は天然に産出する酸性白土（モンモリロナイト系粘土）を硫酸などの鉱酸で処理したものであり、大きい比表面積と吸着能を有する多孔質構造をもった化合物である。酸性白土を更に、酸処理することにより比表面積が変化し、脱色能の改良及び物性が変化することが知られている。

#### 【0024】

酸性白土又は活性白土の比表面積は、酸処理の程度等により異なるが、50～350m<sup>2</sup>/gであるのが好ましく、pH（5%サスペンション）は2.5～8、特に3.6～7のものが好ましい。例えば、酸性白土としては、ミズカエース#600（水澤化学社製）等の市販品を用いることができる。

#### 【0025】

酸性白土又は活性白土は、有機溶媒と水の混合溶液100重量部に対して2.5～25重量部、特に2.5～15重量部添加するのが好ましい。酸性白土又は活性白土の添加量が少なすぎると、カフェイン除去効率が悪くなり、また多すぎるとろ過工程におけるケーキ抵抗が大きくなり好ましくない。

#### 【0026】

また、活性炭と、酸性白土又は活性白土の割合は、重量比で活性炭1に対して1～10

が良く、活性炭：酸性白土又は活性白土＝1：1～1：6であるのが好ましい。

#### 【0027】

緑茶抽出物の分散液と活性炭及び酸性白土又は活性白土との接触処理は、バッチ式、カラムによる連続処理等のいずれの方法で行っても良い。一般には、粉末状の活性炭等を添加、攪拌し、カフェインを選択的に吸着後、ろ過操作によりカフェインを除去した濾液を得る方法、あるいは顆粒状の活性炭等を充填したカラムを用いて連続処理によりカフェインを選択的に吸着する方法が採用される。

活性炭及び酸性白土又は活性白土と接触させた後の緑茶抽出物の分散液は、系中から有機溶媒を取り除くべく減圧蒸留などの方法を用いて留去される。また処理後の緑茶抽出物は液状でも固体状でもいずれでも良いが、固体状態を調製する場合には凍結乾燥やスプレードライなどの方法によって粉末化しても良い。

#### 【0028】

本発明により得られる精製緑茶抽出物は、含有する非重合体カテキン類の組成が処理前と本質的に変化していないのが好ましい。処理前後の有機溶媒と水の混合溶液中の非重合体カテキン類の収率は70重量%以上が好ましく、特に80重量%以上が好ましい。

#### 【0029】

また、本発明により得られる精製緑茶抽出物中の非重合体カテキン類は、エピガロカテキンガレート、ガロカテキンガレート、エピガロカテキン及びガロカテキンからなるガロ体と、エピカテキンガレート、カテキンガレート、エピカテキン及びカテキンからなる非ガロ体の比率が、天然の緑茶葉の組成を維持しているのが好ましい。すなわち、上記4種のガロ体総量は常に上記4種の非ガロ体総量を上回っているのが、精製物においても天然の緑茶葉の組成を維持しているという点において好ましい。

#### 【0030】

また、本発明により得られる精製緑茶抽出物中のカテキンガレート、エピカテキンガレート、ガロカテキンガレート及びエピガロカテキンガレートからなるガレート体の全非重合体カテキン類中での割合は、45重量%以上であるのが、非重合体カテキン類の生理効果の有効性上好ましい。

#### 【0031】

本発明による処理によって得られる精製緑茶抽出物中のカフェイン濃度は、非重合体カテキン類に対して、非重合体カテキン類／カフェイン（重量比）＝25～200、更に30～150、特に30～100であるのが好ましい。

#### 【0032】

本発明によって得られる精製緑茶抽出物は、非重合体カテキン類を25～90重量%、更に25～70重量%、更にまた40～70重量%含有するのが好ましい。また、精製緑茶抽出物の固形分中で、非重合体カテキン類を40～90重量%、更に50～90重量%、更にまた60～90重量%含有するのが好ましい。

#### 【0033】

得られた精製緑茶抽出物は、カフェイン濃度が低いにもかかわらず、高い非重合体カテキン類濃度を維持しており、かつ色相がよく、更に緑茶の風味がほとんどない。従って、精製緑茶抽出物を配合した容器詰飲料は、特にスポーツ飲料、アイソトニック飲料等の非茶系飲料として有用である。

#### 【0034】

本発明の容器詰飲料中には、水に溶解状態にある（A）非重合体カテキン類を、好ましくは0.03～1.0重量%含有し、より好ましくは0.04～0.5重量%、さらに好ましくは0.06～0.4重量%、更に好ましくは0.07～0.4重量%、特に好ましくは0.08～0.3重量%、殊更好ましくは0.09～0.3重量%、もっとも好ましくは0.1～0.3重量%含有する。非重合体カテキン類含量がこの範囲にあると、多量の非重合体カテキン類を容易に取り易く、飲料調製直後の色調の点からも好ましい。当該非重合体カテキン類の濃度は、緑茶抽出物の配合量によって調整することができる。

また、蓄積体脂肪燃焼促進、食事性脂肪燃焼促進及び肝臓β酸化遺伝子発現促進の効果

を出すための成人一日当りの摂取量としては、非重合体カテキン類として300mg以上、好ましくは450mg以上、更に好ましくは500mg以上がよい。また具体的には飲料一本あたり483mg、555mg及び900mg等の摂取によって抗肥満効果や内臓脂肪低減効果が確認されている（特開2002-326932号公報）。

したがって本発明の容器詰飲料においても成人一日当りの摂取量としては、非重合体カテキン類として300mg以上、好ましくは450mg以上、更に好ましくは500mg以上がよく、一日当りの必要摂取量を確保する意味からも、本発明の容器詰飲料1本当たり300mg以上、好ましくは450mg以上、更に好ましくは500mg以上の配合量があるものが良い。

#### 【0035】

本発明の容器詰飲料における非重合体カテキン類とカフェインとの含有重量比は25～200、更に30～150、特に30～100が好ましい。

#### 【0036】

本発明の容器詰飲料には、ナトリウムイオン及び／又はカリウムイオンを含有させても良い。これらのイオンを含有させた本発明飲料は、スポーツドリンク、アイソトニック飲料などの飲料形態として有用である。スポーツドリンクとは、身体運動後に汗として失われる水分、ミネラルを速やかに補給できる飲料であると一般的に規定される。

#### 【0037】

主な生理電解質の中にはナトリウム及びカリウムがある。これらのイオン成分はそれらに対応する水溶性成分ないし、無機塩を添加することで含有させることができる。それらは果汁及び茶抽出物中にも存在する。本発明飲料中における電解質又はイオン成分の量は最終の飲用しうる容器詰飲料中の含有量である。電解質濃度はイオン濃度で示される。カリウムイオン成分は、カリウム塩化物、炭酸カリウム、硫酸カリウム、酢酸カリウム、炭酸水素カリウム、クエン酸カリウム、リン酸カリウム、リン酸水素カリウム、酒石酸カリウム、ソルビン酸カリウム等又はそれらの混合物のような塩として、あるいは加えられた果汁又は茶の成分として本発明飲料に配合できる。カリウムイオンは、0.001～0.12重量%、好ましくは0.002～0.15重量%、最も好ましくは0.003～0.12重量%本発明の容器詰飲料中に含有することが好ましい。同様に、ナトリウムイオン成分は、ナトリウム塩化物、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、クエン酸ナトリウム、リン酸ナトリウム、リン酸水素ナトリウム、酒石酸ナトリウム、安息香酸ナトリウム等及びそれらの混合物のような容易に入手しうるナトリウム塩として、あるいは加えられた果汁又は茶の成分として配合できる。ナトリウム濃度は浸透圧による水の吸収を容易にさせる上で低い方が望ましいが、体から腸に水を浸透圧吸引しない程度であることが、好ましい。これを行うために必要なナトリウムの濃度は、血漿ナトリウムの場合よりも低いことが好ましい。ナトリウムイオンは、0.001～0.5重量%、好ましくは0.002～0.4重量%、更に好ましくは0.003～0.2重量%本発明の容器詰飲料中に含有するのが好ましい。カリウム及びナトリウムイオンに加えて、本発明容器詰飲料には0.001～0.5重量%、好ましくは0.002～0.4重量%、最も好ましくは0.003～0.3重量%の塩化物イオンを更に含有させることができる。塩化物イオン成分は塩化ナトリウム又は塩化カリウムのような塩の形態で配合できる。カルシウム及びマグネシウム、亜鉛、鉄のような他の微量イオンも配合してよい。これらのイオンも塩として配合してよい。飲料中に存在するイオンの合計量には、添加されたイオン量と共に、飲料中に天然で存在するイオン量を含む。例えば、塩化ナトリウムが添加された場合、その量のナトリウムイオン及びその量の塩化物イオンも、それに応じて各イオンの合計量に含まれる。

ここで、ナトリウムイオンやカリウムイオン濃度が低すぎると、飲む場面によっては味的に物足りなく感じ、効果的なミネラル補給ができなくて好ましくない。一方、多すぎると、塩類自体の味が強くなり長期間の飲用に好ましくない。

#### 【0038】

本発明の容器詰飲料には、味を改善する目的で、甘味料が用いられる。甘味料としては人工甘味料類、炭水化物類、グリセロール類（例えばグリセリン）が用いられる。これら

の甘味料は、本発明容器詰飲料中に0.0001~20重量%、更に0.001~15重量%、最も好ましくは0.001~10重量%含有する。前記下限未満であると、甘みがほとんどなく、酸味、塩味とのバランスがとれない。一方上限を超えると、甘すぎて喉にひっかかる感覚が強く、喉越しが低下する。

本発明の容器詰飲料における甘味料としては、人工甘味料を使用することが好ましい。

本発明で利用できる人工甘味料の例にはサッカリン及びサッカリナトリウム、アスパルテム、アセサルフェーム-K、スクラロース、ネオテムなどの高甘度甘味料、ソルビトール、エリスリトール、キシリトールなどの糖アルコールを使用できる。商品としては、アスパルテムからなるスリムアップシュガー、エリスリトールを含んだラカントS、エリスリトールとアスパルテムからなるパルスweetなどを使用できる。

#### 【0039】

目的とする容器詰飲料がエネルギー補給を兼ね備える場合には、炭水化物類の甘味料を使用の方が好ましい。

本発明で利用できる炭水化物類甘味料としては可溶性炭水化物が用いられる。可溶性炭水化物には、甘味料とエネルギー源との役割がある。本発明飲料に使用する炭水化物を選択するにあたっては、十分な胃排出及び腸吸収速度を考慮することが必要である。

#### 【0040】

炭水化物はグルコース及びフルクトースの混合物でも、あるいは消化管で加水分解するか又はグルコース及びフルクトースを形成する炭水化物であってもよい。本明細書で用いられる「炭水化物」という用語は、単糖、オリゴ糖、複合多糖及びそれらの混合物を含む。

#### 【0041】

ここで使用できる単糖にはテトロース、ペントース、ヘキソース及びケトヘキソースがある。ヘキソースの例は、ブドウ糖として知られるグルコースのようなアルドヘキソースである。本発明の容器詰飲料中のグルコースの量は、好ましくは0.0001~20重量%、更に好ましくは0.001~15重量%、最も好ましくは0.001~10重量%である。果糖として知られるフルクトースはケトヘキソースである。本発明容器詰飲料中のフルクトースの量は0.0001~20重量%、更に0.001~15重量%、特に0.001~10重量%である。

本発明飲料中においては、人工甘味料単独系、人工甘味料とグルコース系化合物、もしくは人工甘味料とフルクトース系化合物の組み合わせが好ましい。

#### 【0042】

本発明で利用できる炭水化物類甘味料としては可溶性炭水化物が用いられるが、オリゴ糖としては、これら2種の単糖を体内で生成する炭水化物（即ち、スクロース、マルトデキストリン、コーンシロップ、高フルクトースコーンシロップ）が挙げられる。このオリゴ糖の重要なタイプは二糖である。二糖の例は、ショ糖又はテンサイ糖として知られるスクロースである。本発明容器詰飲料中のスクロースの量は、0.001~20重量%、更に0.001~15重量%、特に0.001~10重量%である。

#### 【0043】

本発明の容器詰飲料のpHは2~6、好ましくは2~5、より好ましくは3~4.5がカテキンの安定性上良い。pHが低すぎると飲料の酸味、刺激臭が強くなる。また、pHが高すぎると風味の調和が取れなくなり、嗜好性が低下するので好ましくない。

#### 【0044】

本発明の容器詰飲料は、苦渋味抑制剤を配合すると飲用しやすくなり好ましい。用いる苦渋味抑制剤は特に限定はないが、サイクロデキストリンが好ましい。サイクロデキストリンとしては、 $\alpha$ -、 $\beta$ -、 $\gamma$ -サイクロデキストリン及び分岐 $\alpha$ -、 $\beta$ -、 $\gamma$ -サイクロデキストリンが使用できる。サイクロデキストリンは飲料中に0.005~0.5重量%、好ましくは0.01~0.3重量%含有するのがよい。本発明の容器詰飲料には、酸化防止剤、香料、各種エステル類、有機酸類、有機酸塩類、無機酸類、無機酸塩類、無機塩類、色素類、乳化剤、保存料、調味料、甘味料、酸味料、ガム、乳化剤、油、ビタミン、アミノ酸、果汁エキス類、野菜エキス類、花蜜エキス類、pH調整剤、品質安定剤などの

添加剤を単独、あるいは併用して配合できる。

#### 【0045】

本発明の容器詰飲料に使用される容器は、一般の飲料と同様にポリエチレンテレフタレートを主成分とする成形容器（いわゆるPETボトル）、金属缶、金属箔やプラスチックフィルムと複合された紙容器、瓶などの通常の形態で提供することができる。ここでいう容器詰飲料とは希釈せずに飲用できるものをいう。

#### 【0046】

本発明の容器詰飲料は、例えば、金属缶のように容器に充填後、加熱殺菌できる場合にあっては食品衛生法に定められた殺菌条件で製造されるが、PETボトル、紙容器のようにレトルト殺菌できないものについては、あらかじめ上記と同等の殺菌条件、例えばプレート式熱交換器などで高温短時間殺菌後、一定の温度迄冷却して容器に充填する等の方法が採用される。また無菌下で、充填された容器に別の成分を配合して充填してもよい。更に、酸性下で加熱殺菌後、無菌下でpHを中性に戻すことや、中性下で加熱殺菌後、無菌下でpHを酸性に戻すなどの操作も可能である。

#### 【実施例】

#### 【0047】

##### カテキン類の測定

精製緑茶抽出物を蒸留水で希釈し、フィルター（ $0.8\mu\text{m}$ ）でろ過後、島津製作所社製、高速液体クロマトグラフ（型式SCL-10AVP）を用い、オクタデシル基導入液、体クロマトグラフ用パックドカラム L-カラムTM ODS（ $4.6\text{mm}\phi\times 250\text{mm}$ ：財団法人 化学物質評価研究機構製）を装着し、カラム温度 $35^{\circ}\text{C}$ で、A液及びB液を用いたグラジエント法により行った。移動相A液は酢酸を $0.1\text{mol/L}$ 含有の蒸留水溶液、B液は酢酸を $0.1\text{mol/L}$ 含有のアセトニトリル溶液とし、試料注入量は $20\mu\text{L}$ 、UV検出器波長は $280\text{nm}$ の条件で行った。

#### 【0048】

##### カフェインの測定

##### （分析機器）

HPLC（日立製作所社製）装置を使用。

プロッター：D-2500，ディテイクター：L-4200

ポンプ：L-7100，オートサンプラー：L-7200

カラム：Inertsil ODS-2、内径 $2.1\text{mm}$ ×長さ $250\text{mm}$

##### （分析条件）

サンプル注入量： $10\mu\text{L}$ ，流量： $1.0\text{mL/min}$

紫外線吸光光度計検出波長： $280\text{nm}$

溶離液A： $0.1\text{M}$ 酢酸水溶液，溶離液B： $0.1\text{M}$ 酢酸アセトニトリル溶液

濃度勾配条件（体積％）

時間	溶離液A	溶離液B
0分	97％	3％
5分	97％	3％
37分	80％	20％
43分	80％	20％
43.5分	0％	100％
48.5分	0％	100％
49分	97％	3％
62分	97％	3％

##### （カフェインのリテンションタイム）

カフェイン： $27.2\text{分}$

ここで求めたエリア％から標準物質により重量％を求めた。

#### 【0049】

##### 色相評価

(分析機器)

UV MINI 1240 (島津製作所社製) 装置を使用。

分光光度計で 450nm の吸光度における値を測定した。測定においては、精製緑茶抽出物をカテキン濃度 100mg% になるようにイオン交換水で希釈し、そのサンプルを用いて吸光度を測定し、色相の指標とした。

安定性の目視評価

精製緑茶抽出物をカテキン濃度 100mg% になるようにイオン交換水で希釈し、50 mL バイアル瓶に入っている評価サンプルをイルミネーター上で内容物の状態を観察し、目視判定した。

【0050】

【表1】

	実施例		比較例	
	1	2	1	2
固体の緑茶抽出物 (g)	200	100	100	100
(ポリフェノンHG、東京フーズテクノ社製)				
エタノール (g)	760	830	0	0
水 (g)	40	70	900	900
活性炭 (g) (クラレコールドIC、クラレケミカル社製)	20	25	0	20
酸性白土 (g) (ミズカエース#600、水澤化学社製)	100	30	100	100
有機溶媒/水 (重量比)	95/5	92/8	0/100	0/100
処理後の非重合体カテキン類 (重量%) <sup>1)</sup>				
GC	6.26	6.25	6.75	7.42
EGC	29.71	29.72	31.75	34.72
C	2.00	1.92	2.22	2.02
EC	9.92	10.01	9.64	8.24
EGCg	37.65	37.65	35.93	35.86
GCg	1.26	1.23	1.39	1.47
ECg	12.14	12.19	11.34	9.61
Cg	1.08	1.02	0.94	0.66
処理後の非重合体カテキン類/カフェイン (重量比)	33.0	59.5	23.6	42.6
処理後の非重合体カテキン類中におけるガラート体率 (重量%)	51.0	51.2	49.6	47.6
処理後の非重合体カテキン類中におけるガロ体率 (重量%)	74.9	73.5	75.8	79.5
処理後の固形分中における非重合体カテキン類濃度 (重量%)	66	64	34	34
吸光度 (-)	0.038	0.031	0.535	0.270
精製品の評価	カフェインが低減され、色相も良い 目視による安定性良好	カフェインが低減され、色相も良い 目視による安定性良好	色相悪化 沈殿物発生	色相悪化 沈殿物発生

1) ポリフェノンHG製剤の非重合体カテキン類組成  
 GC (ガロカテキン) 6.39%、EGC (エピガロカテキン) 29.42%、C (カテキン) 2.16%、EC (エピカテキン) 10.3%、  
 EGCg (エピガロカテキンガラート) 37.13%、GCg (ガロカテキンガラート) 1.93%、ECg (エピカテキンガラート) 11.89%、  
 Cg (カテキンガラート) 0.79%、ガラート体率51.73%、ガロ体率74.88%

【0051】  
 表1に示すように有機溶媒の非常に高い水溶液を使用しつつ、活性炭と酸性白土を併用することにより、非重合体カテキン類のガラート体率やガロ体率を変化させることなく、カフェインを低減し、色相や良く安定性の良好な精製緑茶抽出物を製造できる。

【0052】  
 (実施例1)

## \*1: 緑茶抽出物A

緑茶抽出物 (ポリフェノンHG、東京フードテクノ社製) 200gを常温、250rpm攪拌条件下の95%エタノール水溶液800g中に分散させ、酸性白土ミズカエース#600 (水澤化学社製) 100gを投入後、約10分間攪拌を続けた。その後、2号濾紙で濾過した。その後、活性炭20gを添加し再び2号濾紙で濾過した。次に0.2 $\mu$ mメンブランフィルターによって再濾過を行った。最後にイオン交換水200gを濾過液に添加して、40℃、0.0272kg/cm<sup>2</sup>でエタノールを留去し、イオン交換水でカテキン類濃度を調整して製品を得た。

処理後の非重合体カテキン類は22重量%含有。

処理後の非重合体カテキン類/カフェイン重量比=33.0

処理後のガレート体率51重量%

(実施例2)

## \*2: 緑茶抽出物B

緑茶抽出物 (ポリフェノンHG、東京フードテクノ社製) 100gを常温、250rpm攪拌条件下の70%エタノール水溶液100g中に分散させ、活性炭クラレコールGLC (クラレケミカル社製) 25gと酸性白土ミズカエース#600 (水澤化学社製) 30gを投入後、約10分間攪拌を続けた。次に95%エタノール水溶液800gを30分かけて滴下した後、室温のまま30分間の攪拌を続けた。その後、再び2号濾紙で濾過し、続けて0.2 $\mu$ mメンブランフィルターによって再濾過を行った。最後にイオン交換水200gを濾過液に添加して、40℃、0.0272kg/cm<sup>2</sup>でエタノールを留去し、その後、水分量を調整して所望の製品を得た。

処理後の非重合体カテキン類は22重量%含有。

処理後の非重合体カテキン類/カフェイン重量比=59.5

処理後のガレート体率51.2重量%

(比較例1)

緑茶抽出物としてポリフェノンHG (東京フードテクノ社製) 100gを常温、250rpm攪拌条件下の水900g中に分散させ、酸性白土ミズカエース#600 (水澤化学社製) 100gを投入後、約20分間攪拌を続けた。その後、室温のまま約30分間の攪拌処理を続けた。その後、2号濾紙で濾過したのちに0.2 $\mu$ mメンブランフィルターによって再濾過を行った。最後に実施例1と同等の非重合体カテキン類濃度になるまで、乾燥機で徐々に水分を蒸発させ製品を得た。

処理後の非重合体カテキン類は22重量%含有。

処理後の非重合体カテキン類/カフェイン重量比=23.6

処理後のガレート体率49.6重量%

(比較例2)

緑茶抽出物としてポリフェノンHG (東京フードテクノ社製) 100gを常温、250rpm攪拌条件下の水900g中に分散させ、活性炭クラレコールGLC (クラレケミカル社製) 20gと酸性白土ミズカエース#600 (水澤化学社製) 100gを投入後、約20分間攪拌を続けた。その後、室温のまま約30分間の攪拌処理を続けた。その後、2号濾紙で濾過したのちに0.2 $\mu$ mメンブランフィルターによって再濾過を行った。最後に実施例1と同等の非重合体カテキン類濃度になるまで、乾燥機で徐々に水分を蒸発させ製品を得た。

処理後の非重合体カテキン類は22重量%含有。

処理後の非重合体カテキン類/カフェイン重量比=42.6

処理後のガレート体率47.6重量%

【0053】

<実施例1~2及び比較例1の容器詰飲料の製造法>

表1に示した精製緑茶抽出物を配合し、イオン交換水でメスアップし調合液を調製した。食品衛生法に基づく殺菌工程、ならびにホットパック充填を行い、容器詰飲料とした。

【0054】

【表 2】

配 合	実施例1	実施例2	比較例1
緑茶抽出物A	1.00	—	—
緑茶抽出物B	—	1.00	—
緑茶抽出物C	—	—	0.65
酸化防止剤	0.030	0.030	0.030
酸味料	0.300	0.300	0.300
甘味料	5.000	5.000	5.000
果汁	0.050	0.050	0.050
イオン交換水	バランス	バランス	バランス
総量	100	100	100
飲料のpH	3.5	3.5	3.6
非重合体カテキン類 (重量%)	0.22	0.22	0.22
非重合体カテキン類/カフェイン比	33	59.5	6.1
飲用直後のキレ	4	5	1

## 【0055】

表2で配合されている緑茶抽出物Cは以下の組成であった。

## \*3: 緑茶抽出物C

カフェイン含有カテキン類組成物 (ポリフェノンHG、東京フードテクノ社製) は、非重合体カテキン類含有量33.70重量%、カフェイン含有量5.5重量%、非重合体カテキン類/カフェイン=6.1、ガレート体率51重量%である。

## 【0056】

飲用直後のキレの評価は5名の男性モニターを用い、飲料350mLを単回摂取してもらい、以下の基準で評価点をつけた。

## 【0057】

- 5: キレが非常に良い
- 4: キレが良い
- 3: キレがやや良い
- 2: キレがやや悪い
- 1: キレが悪い

## 【0058】

表2の結果から明らかなように、本発明により緑茶抽出物进行处理することにより、カテキン類組成を維持したまま、カフェインを選択的に除去した本発明品を使用することにより、飲用直後のキレが際立って良くなった容器詰飲料を得ることができる。

## 【書類名】 要約書

## 【要約】

【課題】 緑茶抽出物中のカフェインを、カテキン類組成を著しく変化させることなく、しかも色相を悪化させずに、選択的に除去する方法を提供する。

【解決手段】 緑茶抽出物を有機溶媒と水の重量比が 91/9 ~ 97/3 の混合溶液に分散させ、活性炭及び酸性白土又は活性白土と接触させることを特徴とする、抽出物の乾燥重量で非重合体カテキン類を 25 ~ 90 重量% 含有する精製緑茶抽出物の製造方法。

【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願2004-050719
受付番号	50400309224
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0094
作成日	平成16年 2月27日

<認定情報・付加情報>

【提出日】

平成16年 2月26日

特願 2004-050719

出願人履歴情報

識別番号

[000000918]

1. 変更年月日  
[変更理由]  
住所  
氏名

1990年 8月24日  
新規登録  
東京都中央区日本橋茅場町1丁目14番10号  
花王株式会社

# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP04/017875

International filing date: 01 December 2004 (01.12.2004)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP  
Number: 2004-050719  
Filing date: 26 February 2004 (26.02.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 04 February 2005 (04.02.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record.**

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☒ **BLACK BORDERS**

☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**

☐ **FADED TEXT OR DRAWING**

☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**

☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**

☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**

☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**

☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**

☒ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**

☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**